

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 3 月 1 日 (01.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/14141 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B32B 27/30 (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 樋口達也 (HIGUCHI, Tatsuya) [JP/JP]. 尾崎秀典 (OZAKI, Hidenori) [JP/JP]. 北原隆宏 (KITAHARA, Takahiro) [JP/JP]. 石割和夫 (ISHIWARI, Kazuo) [JP/JP]; 〒566-8585 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社 淀川製作所内 Osaka (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05673
- (22) 国際出願日: 2000 年 8 月 24 日 (24.08.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願平11/238227 1999 年 8 月 25 日 (25.08.1999) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ダイキン工業株式会社 (DAIKIN INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒530-8323 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル Osaka (JP).
- (74) 代理人: 青山 稔, 外 (AOYAMA, Tamotsu et al.); 〒540-0001 大阪府大阪市中央区城見1丁目3番7号 IMPビル 青山特許事務所 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): JP, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: FLUOROPOLYMER LAMINATE

(54) 発明の名称: 含フッ素ポリマー積層体

(57) Abstract: A layer of a tetrafluoroethylene copolymer which comprises 30 to 81 mol% units of tetrafluoroethylene and 70 to 19 mol% units of at least one other monomer, has one or more carbonate groups in the polymer chain and/or at the ends thereof, has a melt flow rate (230°C, 5-kg load) of 0.1 to 100 g/10 min, and has a melting point of 90 to 230°C is bonded to a layer of a polyolefin resin with a layer of an ethylene/vinyl acetate copolymer satisfying the relationship $X \times Y / 100 \geq 7.0$, wherein X (mol%) is the vinyl acetate content and Y (%) is the degree of saponification of methyl ester. The resultant laminate does not deteriorate in adhesion strength with time and has high resistance to fuel oils. In the laminate, the layer of the tetrafluoroethylene copolymer having carbonate groups is tenaciously adherent to the polyolefin resin layer.

(57) 要約:

テトラフルオロエチレン30～81モル%および少なくとも1種の他のモノマー70～19モル%からなり、ポリマー鎖中および/またはポリマー末端にカーボネート基を有し、0.1～100 g/10分のメルトフローレート (230°C、5K g 荷重)、および90～230°Cの融点を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層とポリオレフィン樹脂の層とを、酢酸ビニル含有量X (モル%) およびメチルエステルの鹸化度Y (%) が、 $X \times Y / 100 \geq 7.0$ を満足するエチレン-酢酸ビニル共重合体の層により接着する。得られる積層体は、接着強度が経時的に劣化せず、しかも燃料油に対して耐性が高く、カーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層とポリオレフィン系樹脂の層が強固に接着されている。

WO 01/14141 A1



2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明 細 書

含フッ素ポリマー積層体

技術分野

本発明は、含フッ素ポリマー積層体に関し、更に詳しくは、カーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層と、ポリオレフィン系樹脂の層を含む積層体に関する。

背景技術

含フッ素ポリマーは、耐熱性、耐薬品性、耐候性、表面特性(低摩擦性など)、電気絶縁性に優れているため種々の用途に用いられている。ところが、含フッ素ポリマーは、一般的に機械的強度や寸法安定性が不充分であったり、高価であったりする。

そこで含フッ素ポリマーの長所を最大限に生かし、欠点を最小とするため、含フッ素ポリマーと他の有機材料または無機材料との接着、積層化などの検討が種々行なわれている。

しかし、含フッ素ポリマーは本来接着力が低く、含フッ素ポリマーと他の材料とを直接接着させることは困難で、熱融着などで接着を試みても、接着強度が不充分であったり、ある程度の接着力があっても基材の種類により接着力がばらつきやすく、接着性の信頼性が不充分であることが多かった。

含フッ素ポリマーと他の材料とを接着させる方法として、

1. 基材の表面をサンドブラスター処理などで物理的に荒らす方法、
2. 含フッ素ポリマーをナトリウム・エッチング、プラズマ処理、光化学的処理などの表面処理を行なう方法、
3. 接着剤を用いて接着させる方法

などが主に検討されているが、前記1、2については、処理工程が必要となり、工程が複雑で生産性が悪い。また、基材の種類や形状が限定される。そもそも、接着力も不充分であり、えられた積層体の外観上の問題(着色や傷)も生じやすい。

前記3の接着剤の検討も種々行なわれている。一般のハイドロカーボン系の接着剤は、接着性が不充分であるとともに、それ自体の耐熱性が不充分で、一般に高温での成形や加工を必要とするフッ素ポリマーの接着加工条件には、耐えられ

ず、分解による剥離や着色などを起こす。この接着剤を用いた積層体も接着剤層の耐熱性、耐薬品性、耐水性が不十分であるために、温度変化や、環境変化により接着力が維持できなくなり、信頼性に欠ける。

一方、官能基を有する含フッ素ポリマーを用いた接着剤または接着剤組成物による接着が検討されている。

公知技術には、接着剤として、含フッ素ポリマーにカルボキシル基、カルボン酸無水物基、エポキシ基または加水分解性シリル基を有する hidrocarbon 系単量体（例えば、無水マレイン酸やビニルトリメトキシシランなど）をグラフト重合した含フッ素ポリマーを用いること（例えば特開平 7-18035 号、特開平 7-25952 号、特開平 7-25954 号、特開平 7-173230 号、特開平 7-173446 号、特開平 7-173447 号各公報）や、ヒドロキシルアルキルビニルエーテルのような官能基を含む hidrocarbon 系単量体をテトラフルオロエチレンやクロロトリフルオロエチレンと共重合した含フッ素共重合体と、イソシアナート系硬化剤との接着性組成物の硬化物を、塩化ビニルとコロナ放電処理された ETFE（エチレン/テトラフルオロエチレンポリマー）との接着剤に用いることが開示されている（例えば特開平 7-228848 号公報）。

これら hidrocarbon 系の官能性モノマーをグラフト重合または共重合した含フッ素重合体を用いた接着剤または接着剤組成物は、耐熱性が不十分でフッ素樹脂との高温での加工時や、高温での使用時では分解・発泡などが起き、接着強度を低下させたり、剥離したり、着色したりする。また前記特開平 7-228848 号公報記載の接着剤組成物では、フッ素樹脂はコロナ放電処理を必要とする。

また、カルボン酸やその誘導体を含有するパーフルオロビニルエーテル化合物を含フッ素モノマーと共重合した官能基を有する含フッ素重合体を接着剤や接着剤組成物として用いることが報告されている。米国特許第 4916020 号明細書には、カルボン酸基またはその誘導体を有するパーフルオロビニルエーテルをテトラフルオロエチレンなどと共重合して導入した官能基を有する含フッ素ポリマーを用いた積層体が記載されている。

これは、カルボン酸基などを有する前記の含フッ素重合体がエポキシ樹脂やウレタン樹脂といった接着性樹脂を介して金属やその他基材に積層されたものであ

って、使用時におけるエポキシ樹脂やウレタン樹脂などの耐熱性、耐薬品性、耐溶剤性に問題がある。

WO 98 / 5 8 9 7 3 (1998年12月30日公開) には、ポリマー末端がカーボネート末端であるテトラフルオロエチレン共重合体の層と、熱可塑性樹脂等の他の材料の層と、それらの間に挟まれた中間層を含む積層体が開示されており、他の材料としてポリエチレンを用いた場合に中間層としてエポキシ基含有ポリエチレンを用いた積層体が一例として記載されている。

しかし、エポキシ基含有ポリエチレンにより、ポリマー末端がカーボネート末端であるテトラフルオロエチレン共重合体の層とポリエチレンの層とを接着した場合、初期接着強度は高いものの、経時的に接着強度が低下する傾向があり、また、エポキシ基含有ポリエチレン自体、燃料油に対して耐性が低く、溶解するので、積層体を燃料油用のチューブやタンクに用いることはできない。

発明の開示

本発明の目的は、接着強度が経時的に劣化せず、しかも燃料油に対して耐性の高い、カーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層とポリオレフィン系樹脂の層を強固に接着した積層体を提供することである。

本発明によれば、上記目的は、

(1) テトラフルオロエチレン 30～81 モル% および少なくとも 1 種の他のモノマー 70～19 モル% からなり、ポリマー鎖中および／またはポリマー末端にカーボネート基を有し、0.1～100 g / 10 分のメルトフローレート (230℃、5 Kg 荷重)、および 90～230℃ の融点を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層、

(2) 該層 (1) の一表面上に形成された、酢酸ビニル含有量 X (モル%) およびメチルエステルの鹸化度 Y (%) が、 $X \times Y / 100 \geq 7.0$ を満足するエチレン-酢酸ビニル共重合体の層、および

(3) 該層 (2) の上に形成されたポリオレフィン系樹脂の層からなる積層体により達成される。

本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体中に含まれるカーボネート基とは、一般に $-\text{O}-\text{C}(=\text{O})-\text{O}-$ の結合を有する基であり、具体的には、 $-\text{O}-\text{C}$

(=O)O-R基〔式中、Rは水素原子、有機基（例えば、 $C_1 \sim C_{20}$ アルキル基、エーテル結合を有する $C_2 \sim C_{20}$ アルキル基など）又はI、II、VII族元素である。〕の構造のものである。カーボネート基の例としては、 $-OC(=O)O-CH_3$ 、 $-OC(=O)OC_3H_7$ 、 $-OC(=O)OC_8H_{17}$ 、 $-OC(=O)O-CH_2CH_2OCH_2CH_3$ などが好ましく挙げられる。

ポリマー鎖末端にカーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体とは、テトラフルオロエチレン共重合体のポリマー鎖の片末端又は両末端にカーボネート基含有官能基を有するものである。一方、ポリマー鎖中にカーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体とは、カーボネート基を有するエチレン性単量体を、テトラフルオロエチレンと共重合して得られるものである。1つのポリマー鎖の末端と鎖中の両方にカーボネート基を有していてもよい。

これらのなかでも、ポリマー鎖末端にカーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体が、耐熱性、機械特性、耐薬品性を著しく低下させないので、又は生産性、コスト面で有利であるので、好ましい。

なお、本発明で用いるカーボネート基を有するテトラフルオロエチレン共重合体には、カーボネート基を含まない重合体が配合されていてもよい。

さらに本発明において、熱融着において、積層の相手材料であるポリオレフィンが熱分解しない温度で融着でき、テトラフルオロエチレン共重合体が、そのような温度で、十分に流動できる粘度であることが必要である。ポリオレフィンの好ましい熱融着温度範囲は約 $200^{\circ}C \sim 280^{\circ}C$ である。従って、本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体もこの温度範囲で熔融でき、流動できる熔融粘度を有している必要がある。

特に燃料透過性を低くしようとする場合には、テトラフルオロエチレン共重合体として、高融点タイプのもの、すなわち $0.1 \sim 100 g/10$ 分のメルトフローレート（ $230^{\circ}C$ 、 $5 K g$ 荷重）、および $90 \sim 230^{\circ}C$ の融点を有するものが好ましく使用され、他材が耐熱性に乏しいような場合には、テトラフルオロエチレン共重合体として、低融点タイプのもの、すなわち $0.1 \sim 100 g/10$ 分のメルトフローレート（ $200^{\circ}C$ 、 $5 K g$ 荷重）、および $90 \sim 200^{\circ}C$ の融点を有するものが使用される。

本発明において、テトラフルオロエチレン共重合体のメルトフローレート (MFR) は、好ましくは1.0~100 g/10分、さらに好ましくは1.0~50 g/10分である。

なお本明細書において、メルトフローレートは、200℃または230℃、5 kg荷重、オリフィス径2 mm、ランド長8 mmにおいて測定された値である。

さらに本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体は、230℃で 10^3 sec^{-1} の範囲の臨界剪断速度を有しており、従来のフッ素樹脂よりも低温で成形できる。この臨界剪断速度の故に、本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体は、単独でフィルムや筒状体等の成形品に成形できることはもちろんのこと、ポリオレフィン系樹脂との共押出成形もできる。

好ましい1形態では、本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体は、テトラフルオロエチレン (TFE) 40~81モル%、他のモノマー60~19モル%、特にTFE 40~81モル%、エチレン (Et) 6~43モル%およびヘキサフルオロプロピレン (HFP) 0~30モル%のモノマー組成を有している。

TFEの割合が多いと重合速度が低下するので、より好ましいモノマー組成は、TFE 40~60モル%、Et 24~43モル%、HFP 5~30モル%である。

本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体は、HFPの含有量の増加と共に連続的にその融点が降下し、また結晶性も低下するので透明性は向上する。

別の好ましい形態では、本発明で用いるテトラフルオロエチレン共重合体は、TFE、HFPおよびEtに加えて、変性モノマーとして、式：



(式中、Rfは炭素数2~10のフルオロアルキル基である。)で示されるフルオロビニル化合物を含んでいてよい。

Rfの炭素数が2より少ないとテトラフルオロエチレン共重合体の改質 (例えば、共重合体の成形時や成形品のクラック発生の抑制) が十分になされず、一方10より多くなると重合反応性の点で不利になる。とりわけ好ましい炭素数範囲は3~5である。

得られる共重合体の耐熱性の点からは、Rf基はパーフルオロアルキル基、 ω -ハイドロまたは ω -クロロパーフルオロアルキル基であるのが最も好ましい。

このようなフルオロビニル化合物のうち、共重合性、モノマーの製造時の経済性、得られた共重合体の物性から、式：



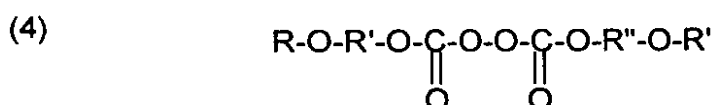
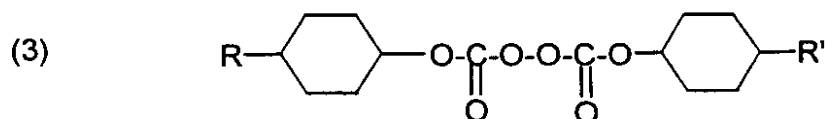
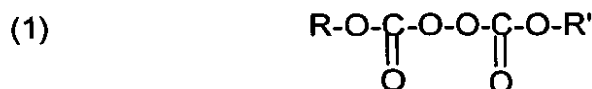
(式中、 n は2～10の数である。)

- 5 で表されるフルオロビニル化合物が好ましく、とりわけ n が3～5の数であるフルオロビニル化合物 (II) が好ましい。

- 10 変性モノマーとしてフルオロビニル化合物 (I) を用いる場合のモノマー組成は、テトラフルオロエチレンとエチレンのモル比が40:60～90:10であり、フルオロビニル化合物の含有量が (共重合体全体に対して) 0～10モル%であり、ヘキサフルオロプロピレンの含有量が (共重合体全体に対して) 0～30モル%である。

本発明のテトラフルオロエチレン共重合体は、ETFEの重合に採用されている重合方法によって製造することができる。

- 15 ポリマー鎖末端にカーボネート基を導入する為に、本発明のテトラフルオロエチレン共重合体の製造には、パーオキシカーボネートを重合開始剤として用いる。パーオキシカーボネートとしては、下記式 (1) ～ (4) :



(式中、RおよびR'は、炭素数1～15の直鎖状または分岐状の一価飽和炭化水素基、もしくは末端にアルコキシ基を含有する炭素数1～15の直鎖状または分岐状の一価飽和炭化水素基、R''は、炭素数1～15の直鎖状または分岐状の二価飽和炭化水素基、もしくは末端にアルコキシ基を含有する炭素数1～15の直鎖状または分岐状の二価飽和炭化水素基を表す。)

で示される化合物が好ましく用いられる。

とりわけ、ジイソプロピルパーオキシカーボネート、ジ-n-プロピルパーオキシカーボネート、t-ブチルパーオキシイソプロピルカーボネート、ビス(4-t-ブチルシクロヘキシル)パーオキシカーボネート、ジ-2-エチルヘキシルパーオキシカーボネートなどが好ましい。

重合方法としては、工業的にはフッ素系溶媒を用い、重合開始剤としてパーオキシカーボネートを使用した水性媒体中での懸濁重合が好ましいが、他の重合方法、例えば溶液重合、塊状重合、なども採用できる。

フッ素系溶媒としては、ハイドロクロロフルオロアルカン類 (例えば、 CH_3CClF_2 , $\text{CH}_3\text{CCl}_2\text{F}$, $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CCl}_2\text{H}$, $\text{CF}_2\text{CClCF}_2\text{CFHCl}$)、クロロフルオロアルカン類 (例えば、 $\text{CF}_2\text{CClCFClCF}_2\text{CF}_3$, $\text{CF}_3\text{CFClCFClCF}_3$)、パーフルオロアルカン類 (例えば、パーフルオ

ロシクロブタン、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_2\text{CF}_3$ ）が使用でき、中でもパーフルオロアルカン類が好ましい。

5 溶媒の使用量は、懸濁性、経済性の面から、水に対し10～100重量%とするのが好ましい。

重合温度は特に限定されないが、0～100℃でよい。

重合圧力は、用いる溶媒の種類、量および蒸気圧、重合温度などの他の重合条件に応じて適宜定められるが、通常0～50kgf/cm²Gであってよい。

10 本発明のテトラフルオロエチレン共重合体の製造に際しては、分子量調整のために、通常の連鎖移動剤、例えばイソペンタン、n-ペンタン、n-ヘキサン、シクロヘキサンなどの炭化水素；メタノール、エタノールなどのアルコール；四塩化炭素、クロロホルム、塩化メチレン、塩化メチルなどのハロゲン化炭化水素を用いることができる。

15 エチレン-酢酸ビニル共重合体として、種々の酢酸ビニル含有量および鹸化度のものが市販されているので、その中から酢酸ビニル含有量X（モル%）およびメチルエステルの鹸化度Y（%）が、 $X \times Y / 100 \geq 7.0$ を満足するものを選択すればよい。

20 例えば、株式会社クラレから市販されているエバールF101は、酢酸ビニル含有量68モル%で、鹸化度95%であるから、 $X \times Y / 100$ は64.6となる。東ソー株式会社から市販されているメルセンH6051は、酢酸ビニル含有量11.2モル%で、鹸化度100%であるから、 $X \times Y / 100$ は11.2となる。田岡化学株式会社から市販されているテクノリンクK200は、酢酸ビニル含有量11.2モル%で、鹸化度85%であるから、 $X \times Y / 100$ は9.52となる。これらはいずれも本発明において使用できるエチレン-酢酸ビニル共重合体である。

25 エチレン-酢酸ビニル共重合体のメルトフローレート（200℃、5Kg荷重）は0.5～100g/10分、好ましくは1.0～50g/10分である。

エチレン-酢酸ビニル共重合体の粘度は、テトラフルオロエチレン共重合体の粘度と近い方が好ましい。両者の粘度が離れすぎると、成形時テトラフルオロエ

チレン共重合体の層あるいはエチレン-酢酸ビニル共重合体の層の厚みにムラが生じる。従って、エチレン-酢酸ビニル共重合体のメルトフローレートは、上記の範囲にあるのが望ましい。

ポリオレフィン系樹脂としては、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、エチレン-酢酸ビニル共重合体（EVA）、エチレン-メチルアクリレート共重合体、エチレン-エチルアクリレート共重合体、エチレン-エチルアクリレート-無水マレイン酸共重合体などが好ましく使用できる。とりわけ、ポリエチレンが好ましい。

エチレン-酢酸ビニル共重合体層（2）とポリオレフィン系樹脂層（3）との接着強度を向上するために、既知の接着性オレフィン（例えば無水マレイン酸変性ポリエチレン、無水マレイン酸変性ポリプロピレンなど）、無水マレイン酸変性ポリスチレンなどを接着剤として用いてもよい。

本発明の積層体の各層には、それぞれが持つ特性を損なわない範囲で、それぞれの層に適当な補強剤、充填剤、安定剤、紫外線吸収剤、顔料、その他の適当な添加剤を含有させることも可能である。

このような添加剤によって、熱安定性、表面硬度、耐摩耗性、帯電性、耐候性、その他の性質を向上することができる。

本発明の積層体の製法は、テトラフルオロエチレン共重合体の形態や他の層に用いる材料の形態などに応じて、適宜選択される。

例えば、各層を形成する重合体材料を、多層共押出しで各層を同時に一体化し、フィルム形状、シート形状、チューブ形状、ホース形状、ボトル形状、タンク形状の成形品を製造することができる。

実施例

実施例 1

含フッ素ポリマー（モノマー組成（モル比）：TFE/Et/HEP/H2P（H2P：CH₂=CF（CF₂）₃H）=46.2/35.8/17.5/0.5；融点158℃；MFR20g/10分（230℃、5kg荷重）のペレットを直径120mmの金型に入れ、230℃に設定したプレス機にセットし、約50kgf/cm²の圧力で熔融プレスして厚さ0.5mmのシートを作成した。

別途、エチレン-酢酸ビニル共重合体（EVOH）（株式会社クラレ製エバー
ルF101A。酢酸ビニル含有量X：68モル%；鹸化度Y：95%； $X \times Y$
／100＝64.6）、無水マレイン酸変性ポリエチレン（三井化学株式会社製
アドマーNF528）、および高密度ポリエチレン（日本ポリケム株式会社製バ
テックHD HJ560）それぞれを、230℃で上記と同様にプレスして厚さ
0.5mmのシートを作成した。

次に、上記で得たシート4枚を含フッ素ポリマー／エチレン-ビニルアルコー
ル共重合体／無水マレイン酸変性ポリエチレン／高密度ポリエチレンの順に重ね、
含フッ素ポリマーシートとエチレン-ビニルアルコール共重合体シートとの間の
一部にスペーサーとしてポリイミドフィルムを挟み、直径120mmの金型に入れ、
230℃に設定したプレス機にセットし、10kgf/cm²の圧力で10
秒間加圧して溶着させた。

スペーサーのポリイミドフィルムを取り除き、非溶着部分を接着強度試験にお
けるつかみ部分とし、テンシロン万能試験機（オリエンテック株式会社製）を用
い、T字剥離試験法によって、最大剥離強度（初期）、および耐燃料油性強度を
測定した。

耐燃料油性強度としては、サンプルを、燃料（CM15：イソオクタン／トル
エン＝50／50（容量比）にメタノール15容量%を混合）に60℃で168
時間浸漬した後に測定した最大剥離強度を用いた。

結果を表1に示す。

実施例2～3および比較例1～4

層の構成を以下のように変え、各層の材料を以下のように選択した以外は実施
例1と同様にしてシートを作成し、溶着し、最大剥離強度（初期）、および耐燃
料油性強度を測定した。結果を表1に示す。

（実施例2）

層構成：TFE共重合体層／エチレン-酢酸ビニル共重合体層／ポリオレフィ
ン層

TFE共重合体：実施例1と同じ

エチレン-酢酸ビニル共重合体層：EVOH（東ソー株式会社製メルセンH6

051。酢酸ビニル含有量X：11.2モル%；鹸化度100%； $X \times Y / 100 = 11.2$ ）

ポリオレフィン：低密度ポリエチレン（東ソー株式会社製ペトロセン 292）

5 （比較例1）

層構成：TFE共重合体層／エポキシ基含有ポリエチレン／ポリオレフィン層

TFE共重合体：実施例1と同じ

エポキシ基含有ポリエチレン：エポキシ変性ポリエチレン（日本ポリオレフィン株式会社製レクスパール RA3150）

10 ポリオレフィン：ポリエチレン（宇部興産株式会社製UBEポリエチレン L519）

実施例3

層構成：実施例1と同じ

15 エチレンー酢酸ビニル共重合体層として、EVOH（田岡化学株式会社製テクノリンクK 200。酢酸ビニル含有量：11.2モル%；鹸化度85%； $X \times Y / 100 = 9.52$ ）を用いた以外は実施例1と同じ

比較例2

層構成：実施例1と同じ

20 エチレンー酢酸ビニル共重合体層として、EVOH（東ソー株式会社製メルセンH6410M。酢酸ビニル含有量：11.2モル%；鹸化度40%； $X \times Y / 100 = 4.48$ ）を用いた以外は実施例1と同じ

比較例3

層構成：実施例1と同じ

25 エチレンー酢酸ビニル共重合体層として、EVA（東ソー株式会社製ウルトラセン540。酢酸ビニル含有量：3.5モル%；鹸化度0%； $X \times Y / 100 = 0$ ）を用いた以外は実施例1と同じ

比較例4

層構成：実施例1と同じ

TFE共重合体として、実施例1の含フッ素ポリマーの粉末190kg、純水

200 Lを500 Lステンレス製槽に入れ、28%アンモニア水14 kgを加え
 攪拌を行ないながら80℃で5時間加熱した。内容物粉末を取り出し、水洗、乾
 燥を行ない、粉末状のポリマーを得、これを用いた。

表 1

	T F E 共重合体	接着層 (エチレ ン-酢酸ビニル 共重合体層)	最大接着強 度 (初期) (kg/cm)	燃料油浸漬 後の接着強 度 (kg/cm)	燃料油浸漬 による接着 剤層の溶解 試験
実施例 1	(実施例 1)	EVOH $X \times Y / 100 = 64.6$	樹脂切れ >7.38	2.30	不溶
実施例 2	(実施例 1)	EVOH $X \times Y / 100 = 11.2$	2.82	1.78	不溶
比較例 1	(実施例 1)	(エポキシ変性 ポリエチレン)	樹脂切れ >4.06	× 接着剤溶解 のため自然 剥離	溶解
実施例 3	(実施例 1)	EVOH $X \times Y / 100 = 9.52$	2.64	× 接着剤溶解 のため自然 剥離	溶解
比較例 2	(実施例 1)	EVOH $X \times Y / 100 = 4.48$	× 自然剥離		溶解
比較例 3	(実施例 1)	EVA $X \times Y / 100 = 0$	× 自然剥離		溶解
比較例 4	(実施例 1) (アミド末端)	EVOH $X \times Y / 100 = 64.6$	× 自然剥離		不溶

請求の範囲

1. (1) テトラフルオロエチレン 30～81 モル% および少なくとも 1 種の他のモノマー 70～19 モル% からなり、ポリマー鎖中および/またはポリマー末端にカーボネート基を有し、0.1～100 g/10 分のメルトフローレート (230℃、5 K g 荷重)、および 90～230℃ の融点を有するテトラフルオロエチレン共重合体の層、

(2) 該層 (1) の一表面上に形成された、酢酸ビニル含有量 X (モル%) およびメチルエステルの鹸化度 Y (%) が、 $X \times Y / 100 \geq 7.0$ を満足するエチレン-酢酸ビニル共重合体の層、

および

(3) 該層 (2) の上に形成されたポリオレフィン系樹脂の層からなる積層体。

2. 該層 (1) のテトラフルオロエチレン共重合体が、0.1～100 g/10 分のメルトフローレート (200℃、5 K g 荷重)、および 90～200℃ の融点を有する請求項 1 に記載の積層体。

3. テトラフルオロエチレン共重合体が、テトラフルオロエチレン 40～81 モル% および少なくとも 1 種の他のモノマー 60～19 モル% からなる請求項 1 または 2 に記載の積層体。

4. テトラフルオロエチレン共重合体のメルトフローレートが 1.0～100 g/10 分である請求項 1～3 のいずれかに記載の積層体。

5. テトラフルオロエチレン共重合体のメルトフローレートが 1.0～50 g/10 分である請求項 1～3 のいずれかに記載の積層体。

6. テトラフルオロエチレン共重合体が、230℃ で $10 \sim 10^3 \text{ sec}^{-1}$ の臨界剪断速度を有する請求項 1～5 のいずれかに記載の積層体。

7. テトラフルオロエチレン共重合体が、テトラフルオロエチレン、エチレン、式： $\text{CH}_2=\text{CFRf}$ (式中、Rf は炭素数 2～10 のフルオロアルキル基である。) で示されるフルオロビニル化合物、およびヘキサフルオロプロピレンを含んでなり、テトラフルオロエチレンとエチレンのモル比が 40:60～90:10 であり、フルオロビニル化合物の含有量が (共重合体全体に対して) 0～10 モ

ル%であり、ヘキサフルオロプロピレンの含有量が（共重合体全体に対して）0～30モル%である請求項1～6のいずれかに記載の積層体。

- 5 8. エチレン-酢酸ビニル共重合体が、酢酸ビニル含有量X（モル%）およびメチルエステルの鹸化度Y（%）が、 $X \times Y / 100 \geq 10.0$ を満足するエチレン-酢酸ビニル共重合体である請求項1～7のいずれかに記載の積層体。

9. エチレン-酢酸ビニル共重合体のメルトフローレート（200℃、5Kg荷重）は0.5～100g/10分である請求項1～8のいずれかに記載の積層体。

- 10 10. 請求項1～9のいずれかに記載の積層体からなる管状体。
11. 燃料用チューブである請求項10に記載の管状体。
12. 請求項1～9のいずれかに記載の積層体からなる容器。
13. 燃料タンクである請求項12に記載の容器。
14. 請求項1～9のいずれかに記載の積層体からなるフィルム。
15. 請求項1～9のいずれかに記載の積層体からなるシート。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05673

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ B32B27/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl.⁷ B32B1/00-35/00, F16L11/00-11/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO, 98/58973, A (Daikin Industries, Ltd.), 30 December, 1998 (30.12.98) & EP, 992518, A	1-15
Y	JP, 56-86748, A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.), 14 July, 1981 (14.07.81), Claims; page 4, lines 2 to 8 (Family: none)	1-15
P	WO, 99/45044, A (Daikin Industries, Ltd.), 10 September, 1999 (10.09.99) (Family: none)	1-15

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 November, 2000 (09.11.00)

Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

THIS PAGE BLANK (0000)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ B32B27/30

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B32B1/00-35/00, F16L11/00-11/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2000年
日本国登録実用新案公報 1994-2000年
日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)
WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO, 98/58973, A (ダイキン工業株式会社) 30. 12 月. 1998 (30. 12. 98) & EP, 992518, A	1-15
Y	JP, 56-86748, A (凸版印刷株式会社) 14. 7月. 1 981 (14. 07. 81) 特許請求の範囲, 第4頁第2行~8行 (ファミリーなし)	1-15
P	WO, 99/45044, A (ダイキン工業株式会社) 10. 9 月. 1999 (10. 09. 99) (ファミリーなし)	1-15

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 09. 11. 00

国際調査報告の発送日 21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
芦原 ゆりか 印
電話番号 03-3581-1101 内線 3430

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT
NOTIFICATION OF ELECTION
(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 18 April 2001 (18.04.01)	
International application No. PCT/JP00/05673	Applicant's or agent's file reference 661941
International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)	Priority date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99)
Applicant HIGUCHI, Tatsuya et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
16 March 2001 (16.03.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer Maria Kirchner Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 661941	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JPO0/05673	国際出願日 (日.月.年) 24.08.00	優先日 (日.月.年) 25.08.99	
出願人(氏名又は名称) ダイキン工業株式会社			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

- a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。
☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。
- b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。
☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。
☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。
☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、
第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。 ☒ なし
☐ 出願人は図を示さなかった。
☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B32B27/30

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B32B1/00-35/00, F16L11/00-11/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	WO, 98/58973, A (ダイキン工業株式会社) 30. 12 月. 1998 (30. 12. 98) & EP, 992518, A	1-15
Y	JP, 56-86748, A (凸版印刷株式会社) 14. 7月. 1981 (14. 07. 81) 特許請求の範囲, 第4頁第2行~8行 (ファミリーなし)	1-15
P	WO, 99/45044, A (ダイキン工業株式会社) 10. 9 月. 1999 (10. 09. 99) (ファミリーなし)	1-15

☐ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

芦原 ゆりか

4S

9161

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

3-
Translation
10/069,342

Applicant's or agent's file reference 661941	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/05673	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)	Priority date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC B32B 27/30		
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand 16 March 2001 (16.03.01)	Date of completion of this report 22 November 2001 (22.11.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/05673

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
pages _____, as originally filed
pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
pages _____, as originally filed
pages _____, filed with the demand
pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.
PCT/JP 00/05673

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-15	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Document 1: WO, 98/58973, A (Daikin Industries, Ltd.),
December 30, 1998 (30.12.98) & EP, 992518, A
Document 2: JP, 56-86748, A (Toppan Printing Co., Ltd.),
July 14, 1981 (14.07.81), (Family: none)

Neither of the documents listed above and cited in the international search report discloses a laminate wherein a fluoride resin is laminated using an ethylene/vinyl acetate copolymer wherein the vinyl acetate copolymer content and the degree of saponification satisfy a prescribed relationship. Moreover, it would not be easy to conceive of the aforementioned feature from the disclosures in the above-listed documents.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT



From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To: AOYAMA, Tamotsu
Aoyama & Partners
IMP Building
3-7, Shiromi 1-chome, Chuo-ku
Osaka-shi, Osaka 540-0001
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 01 March 2001 (01.03.01)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference 661941			
International application No. PCT/JP00/05673	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)	Priority date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99)	
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on
01 March 2001 (01.03.01) under No. WO 01/14141

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

REC'D 07 DEC 2001

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 661941	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JP00/05673	国際出願日 (日.月.年) 24.08.00	優先日 (日.月.年) 25.08.99	
国際特許分類 (IPC) Int.Cl ⁷ B32B27/30			
出願人 (氏名又は名称) ダイキン工業株式会社			

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。 <input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u> </u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。 I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 16.03.01	国際予備審査報告を作成した日 22.11.01		
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 芦原 ゆりか	4S	9161
電話番号 03-3581-1101 内線 3430			

様式PCT/IPEA/409 (表紙) (1998年7月)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- | | | |
|-------------------------------------|----------------|----------------------|
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書 | 第 _____ ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | PCT19条の規定に基づき補正されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 請求の範囲 | 第 _____ 項、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 図面 | 第 _____ ページ/図、 | 付の書簡と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 出願時に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの |
| <input type="checkbox"/> 明細書の配列表の部分 | 第 _____ ページ、 | 付の書簡と共に提出されたもの |

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-15

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲

1-15

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲

1-15

有

請求の範囲

無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: WO 98/58973 A (ダイキン工業株式会社) 30. 12月. 1998 (30. 12. 98) & EP 992518 A

文献2: JP 56-86748 A (凸版印刷株式会社) 14. 7月. 1981 (14. 07. 81) (ファミリーなし)

国際調査報告において提示した上記文献には、いずれも、酢酸ビニル含有量とメチルエステルの鹸化度の関係が規定範囲内であるエチレン-酢酸ビニル共重合体を用いてフッ素樹脂層と積層する構成が記載されておらず、また、上記構成は、上記文献の記載から容易に想到するものとも認められない。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

AOYAMA, Tamotsu
Aoyama & Partners
IMP Building
3-7, Shiromi 1-chome, Chuo-ku
Osaka-shi, Osaka 540-0001
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 November 2000 (07.11.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference 661941	
International application No. PCT/JP00/05673	International filing date (day/month/year) 24 August 2000 (24.08.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 25 August 1999 (25.08.99)
Applicant DAIKIN INDUSTRIES, LTD. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
25 Augu 1999 (25.08.99)	11/238227	JP	13 Octo 2000 (13.10.00)

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer Tessadel PAMPLIEGA <i>Tdp</i></p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
---	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)